



①9 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**  
⑩ **DE 196 31 628 A 1**

⑤1 Int. Cl.<sup>8</sup>:  
**B01 F 7/22**  
C 07 C 57/07  
C 07 C 57/05  
C 07 B 63/00

⑳ Aktenzeichen: 196 31 628.6  
㉔ Anmeldetag: 5. 8. 96  
㉕ Offenlegungstag: 12. 2. 98

DE 196 31 628 A 1

㉚ Anmelder:  
BASF AG, 67063 Ludwigshafen, DE

㉛ Vertreter:  
Bardehle, Pagenberg, Dost, Altenburg, Frohwitter,  
Geissler & Partner Patent- und Rechtsanwälte, 68165  
Mannheim

㉜ Erfinder:  
Heida, Bernd, 67158 Ellerstadt, DE; Thiessen, Fritz,  
Dr., 67071 Ludwigshafen, DE; Hammon, Ulrich, Dr.,  
68165 Mannheim, DE

⑤4 Mischvorrichtung für Flüssigkeiten

⑤7 Mischvorrichtung zur Vermischung von mindestens zwei flüssigen Phasen, die ein Gehäuse mit einem Innendurchmesser  $D$  aufweist, in dem mindestens ein Rührer mit zwei bis fünf kreisabschnittsförmigen Flügeln angebracht ist, die einen Krümmungsradius  $K$  aufweisen, wobei die durch den Rührer bei dessen Drehung überstrichene kreisförmige Fläche innerhalb des Gehäuses einen Durchmesser  $E$  besitzt und wobei  $K$  von  $0,10 \cdot D$  bis  $0,30 \cdot D$ , vorzugsweise von  $0,125 \cdot D$  bis  $0,25 \cdot D$ , und  $E$  von  $0,35 \cdot D$  bis  $0,65 \cdot D$ , vorzugsweise von  $0,45 \cdot D$  bis  $0,55 \cdot D$  beträgt.

DE 196 31 628 A 1

Die vorliegende Erfindung bezieht sich auf eine Mischvorrichtung und eine vorteilhafte Anwendung dieser Mischvorrichtung im Rahmen der Herstellung von Acrylsäure durch katalytische Gasphasenoxidation von Propen.

Bei einer Vielzahl technischer Verfahren müssen mehrere Flüssigkeiten miteinander vermischt werden. Bei der Flüssig-Flüssig-Extraktion eines Stoffes aus einer Lösung muß zum Beispiel ein Extraktionsmittel mit der Lösung möglichst intensiv vermischt werden, um zunächst einen schnellen und vollständigen Stoffaustausch und anschließend eine vollständige und rasche Phasentrennung zu gewährleisten. Um eine gute Phasentrennung zu erreichen, ist man dabei um eine schonende Durchmischung bemüht, d. h. es darf beim Rühren nicht zuviel Energie zugeführt werden.

Das Problem der Mischung von Flüssigkeiten ist zum Beispiel auch bei der Acrylsäureherstellung durch katalytische Gasphasenoxidation von Propen von besonderer Bedeutung. Bei diesem Verfahren zur Herstellung von Acrylsäure wird das zu oxidierende Propen häufig mit einem Verdünnungsgas oder mit einem nicht umgesetzte Edukte enthaltenden Kreisgas vermischt und dann der Gasphasenoxidation zugeführt. Das Reaktionsgemisch der Gasphasenoxidation wird dann zur Abtrennung der Acrylsäure in eine Absorptionskolonne geleitet. Dort wird der überwiegende Teil der entstandenen Acrylsäure mit Hilfe eines Lösungsmittels aus dem Reaktionsgemisch abgetrennt. Die nicht absorbierten Komponenten werden gasförmig aus der Absorptionskolonne entnommen und einer Kondensationsstufe zugeführt. Der kondensierbare und kondensierte Teil dieses Gasgemischs wird abgetrennt und als sogenanntes Sauerwasser abgeleitet. Der nicht kondensierbare gasförmige Teil wird teilweise wieder in die Gasphasenoxidation zurückgeführt und bildet das sogenannte Kreisgas. Das Sauerwasser wird im Regelfall verbrannt. Im Lösungsmittel verbleiben nach der Absorption unerwünscht hohe Mengen an Mittelsiedern, zum Beispiel Maleinsäureanhydrid. Diese Mittelsieder können sich ohne Gegenmaßnahmen im Lösungsmittel aufpegeln. Das kann dadurch vermieden werden, daß in einer zusätzlichen Extraktionsstufe Mittelsieder mit Hilfe von Sauerwasser aus dem Lösungsmittel extrahiert werden.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist die Bereitstellung einer Mischvorrichtung für Gemische von Flüssigkeiten unterschiedlicher Dichte, die zur intensiven Durchmischung und leichten Trennbarkeit führt. Eine weitere Aufgabe der Erfindung besteht in der Bereitstellung eines verbesserten Verfahrens zur Abtrennung von organischen Lösungsmitteln aus einer wäßrigen Lösung. Vor allem soll auch das Acrylsäureherstellungsverfahren durch katalytische Gasphasenoxidation von Propen verbessert werden.

Diese Aufgaben werden durch die in den Ansprüchen beschriebene Mischvorrichtung und die dort beschriebenen Verfahren bzw. Verwendungen gelöst.

Erfindungsgemäß wird eine Mischvorrichtung zur Vermischung von mindestens zwei flüssigen Phasen bereitgestellt, die ein Gehäuse mit einem Innendurchmesser  $D$  aufweist, in dem mindestens ein Rührer mit zwei bis fünf, vorzugsweise drei, kreisabschnittsförmigen Flügeln angebracht ist, die einen Krümmungsradius  $K$  aufweisen und wobei die durch den Rührer bei dessen Drehung überstrichene kreisförmige Fläche innerhalb des Gehäuses einen Durchmesser  $E$  besitzt. Dabei gelten für

$K$  und  $E$  erfindungsgemäß die folgenden Bedingungen:  $K$  beträgt von  $0,10 \cdot D$  bis  $0,30 \cdot D$ , vorzugsweise von  $0,125 \cdot D$  bis  $0,25 \cdot D$ , und  $E$  beträgt von  $0,35 \cdot D$  bis  $0,65 \cdot D$ , vorzugsweise von  $0,45 \cdot D$  bis  $0,55 \cdot D$ . Wenn der Rührer, wie bevorzugt, bei seinen Drehungen etwa die Hälfte des Gehäusedurchmessers überstreicht, also  $D = 2 \cdot E$  gilt, ergibt sich für die Flügel eine bevorzugte Form zwischen einem Viertelkreis und einem Halbkreis. Bei Verwendung des erfindungsgemäßen Mischers erfolgt ein schneller Stoffaustausch und anschließend auch eine rasche Entmischung der Phasen in einem Abscheider. Die Erklärung liegt vermutlich darin, daß der erfindungsgemäße Mischer zu einer einheitlichen Tröpfchengröße, typischerweise unter  $1 \text{ mm}$ , in den anwesenden Phasen führt, was einerseits zu einem schnelleren Stoffübergang und andererseits zu einer schnelleren Phasentrennung führt. Erhebliche Einsparungen bei der Mischzeit bzw. der Baugröße des Mischers sind damit möglich. Dementsprechend kann auch die Abscheidezeit bzw. die Baugröße des Abscheiders verringert werden.

Vorzugsweise ist an der Innenseite des Gehäuses mindestens eine Wand angebracht, welche wiederum vorteilhafterweise senkrecht zum Gehäuse angeordnet ist. Solche Stromstörer sind bekannt und fördern die Verwirbelung des Flüssigkeitsgemisches während der Rotor umläuft. Insbesondere wenn genau so viele Wände vorhanden sind, wie der Rührer Flügel aufweist und diese Wände in regelmäßigen Abständen an der Innenseite des Gehäuses angebracht sind, entstehen mehrmals bei jedem Umlauf Kammern, in denen das Gemisch aufgrund der Bewegung des Rührers stark verwirbelt wird. Vor allem wird damit aber verhindert, daß nach einiger Rotationszeit ein Großteil der Flüssigkeit mit dem Rotor umläuft.

Bevorzugt ist auch eine Mischvorrichtung, bei der im Gehäuse mindestens zwei Rührer auf einer gemeinsamen Rotationsachse nacheinander in etwa regelmäßigen Abständen angebracht sind, wobei der erste und der letzte, bei vertikaler Anordnung der oberste und der unterste Rührer vom Gehäuse entlang der Rotationsachse einen Abstand einhält, der  $0,4$  bis  $0,6$  mal, vorzugsweise etwa  $0,5$  mal, so groß ist, wie der Abstand entlang der Rotationsachse zwischen den Rührern. Der Abstand zwischen den verschiedenen Rührern soll in etwa gleich sein. Dadurch ergeben sich besonders günstige Strömungsverhältnisse, die zu der gewünschten intensiven Vermischung und leichten Trennbarkeit führen.

Die beschriebene Mischvorrichtung kann in einem Verfahren zur Abtrennung eines oder mehrerer organischen Lösungsmittel aus einer wäßrigen Lösung in vorteilhafter Weise eingesetzt werden, denn mit dem erfindungsgemäßen Mischer kann sowohl die Vermischung und damit der Stoffaustausch, als auch die Abtrennung stark beschleunigt werden. Mit der vorliegenden Erfindung können damit Verfahren der Flüssig-Flüssig-Extraktion erheblich verbessert werden.

Erfindungsgemäß kann der neuartige Mischer auch in einem verbesserten Verfahren zur Herstellung von Acrylsäure durch katalytische Gasphasenoxidation von Propen verwendet werden, wobei aus dem Reaktionsgemisch der Gasphasenoxidation Acrylsäure in einer Absorptionsstufe mit Hilfe eines ersten Lösungsmittels absorbiert wird, aus dieser Absorptionsstufe ein Gasgemisch entnommen wird, das arm an dem ersten Lösungsmittel und an Acrylsäure ist, in einer Kondensationsstufe das Gasgemisch, vorzugsweise auf eine Temperatur von  $20^\circ \text{C}$  bis  $60^\circ \text{C}$  abgekühlt wird, die konden-

sierte Phase des Gasgemisches aus der Kondensationsstufe als Sauerwasser entnommen wird, und die gasförmige Phase des Gasgemisches aus der Kondensationsstufe entnommen und zumindest teilweise als Kreisgas zur Gasphasenoxidation zurückgeführt wird. Erfindungsgemäß wird dabei das Sauerwasser, zusammen mit mindestens einem Teilstrom des ersten Lösungsmittels, einer Mischvorrichtung wie oben beschrieben zugeleitet und anschließend einem Abscheider zugeführt, um Mittelsieder, insbesondere Maleinsäureanhydrid, aus dem ersten Lösungsmittel abzutrennen. Das erste Lösungsmittel enthält vorzugsweise mindestens ein substituiertes oder unsubstituiertes Diphenyl, substituierten oder unsubstituierten Diphenylether oder Dimethylphthalat oder Mischungen davon.

Die vorliegende Erfindung wird im folgenden anhand der Fig. 1 bis 3 beschrieben. Dabei zeigen:

Fig. 1 Beispiel einer erfindungsgemäßen Mischvorrichtung in Aufsicht;

Fig. 2 Beispiel einer erfindungsgemäßen Mischvorrichtung mit zwei Rührern;

Fig. 3 Beispiel eines erfindungsgemäß modifizierten Verfahrens zur Herstellung von Acrylsäure.

Fig. 1 zeigt einen Mischer mit einem Gehäuse 1 und einem Rührer 2, der um eine Rotationsachse R drehbar ist. Die Drehrichtung ist mit einem Pfeil in der Skizze angegeben. Die Abmessungen und die Anordnung des Rührers entsprechen den in den Ansprüchen aufgestellten und oben wiedergegebenen Bedingungen für den Krümmungsradius K und den Durchmesser der überstrichenen Fläche E. Die Flügel des dargestellten Rührers können zum Beispiel einfach durch Teilung, zum Beispiel Viertelung, eines Rohres mit passendem Durchmesser hergestellt werden. Der Mischer nach Fig. 1 weist einen dreiflügeligen Rührer auf, mit dem in der Praxis besonders vorteilhafte Ergebnisse erzielt werden können. Wie dargestellt, können auch Schottbleche 3 an der Innenwand des Gehäuses angebracht werden, um eine Rotationsströmung der Flüssigkeit mit dem Rührer zu verhindern oder zu vermindern.

Diese Trennwände 3 brauchen nicht voll an dem Gehäuse anzuliegen, sie können auch einen Spalt an der Gehäusewand frei lassen, was unter Umständen zu einer zusätzlichen Verwirbelung des Flüssigkeitsgemisches führen kann.

In Fig. 2 ist eine besonders vorteilhafte Ausgestaltung des Mixers gemäß der vorliegenden Erfindung dargestellt. Das Gehäuse 21 dieses Mixers verfügt über zwei Einläufe 22, 23 für die zu vermischenden Flüssigkeiten und einen Ablauf 24 für das Gemisch. Zwei Rührer 27, 28, sind in dem Gehäuse 21 nach obigen Bedingungen für die Anordnung und Ausbildung des Rührers angebracht, das heißt ihr Krümmungsradius und der Durchmesser der von ihnen überstrichenen Fläche erfüllt die in den Ansprüchen angegebenen Bedingungen. Die danach noch offenen Parameter, nämlich der Abstand der Rührer 27, 28 von der Oberseite 25 und der Unterseite 26 des Gehäuses 21 entlang der gemeinsamen Rotationsachse R der Rührer 27, 28 sind vorteilhafterweise wie folgt festgelegt: Der Abstand  $H_0$  des Rührers 27 zur Oberseite 25 und der Abstand  $H_U$  des Rührers 28 zur Unterseite 26 des Gehäuses 21 ist etwa gleich und beträgt etwa die Hälfte des Abstands H der beiden Rührer voneinander. Diese Anordnung führt zu besonders vorteilhaften Strömungsbedingungen in dem Mischer, so daß die gewünschte vollständige Vermischung mit einheitlicher Tröpfchengröße sehr gut erreicht wird. Statt zwei Rührern können auch drei oder

mehr Rührer in dieser Weise angeordnet werden, wobei der Abstand zweier benachbarter Rührer immer jeweils etwa doppelt so groß ist, wie der Abstand des ersten und letzten bzw. obersten und untersten Rührers von der

Gehäusewand.

Fig. 3 stellt schließlich ein Blockbild eines erfindungsgemäß modifizierten Verfahrens zur Herstellung von Acrylsäure durch katalytische Gasphasenoxidation dar. Dabei wird Propen über eine Leitung 31 und ein Verdünnungsgas, zum Beispiel Luft oder Wasserdampf über eine Leitung 32 einem Reaktor 33 zugeführt, in dem die katalytische Gasphasenoxidation von Propen abläuft. Das dabei entstehende Acrolein kann in einem weiteren, nicht dargestellten Reaktor oxidiert werden.

Über eine Leitung 34 gelangt das Reaktionsgemisch der Gasphasenoxidation in einen Quenchapparat 35. Dort wird das Reaktionsgemisch abgekühlt und ein Teil des Absorptionsmittels (Lösungsmittel) verdampft, das über eine Leitung 317 einer Absorptionskolonne 37 zugeführt wird und von dort über eine Kühleinheit 36 zum Quenchapparat 35 geleitet wird. Schwereisende NebenkompONENTEN des Lösungsmittels werden im Quenchapparat 35 kondensiert und über eine Entnahmeleitung 319 abgezogen. Sie werden, gegebenenfalls nach einer Abdestillation von Lösungsmittel, entsorgt, zum Beispiel verbrannt. Das bereits stark abgekühlte Reaktionsgemisch wird vom Quenchapparat 35 weiter zur Kühleinheit 36, die zum Beispiel aus Kühlkreisläufen besteht, geleitet, wo es auf die geeignete Absorptionstemperatur gekühlt wird. Anschließend wird das Reaktionsgemisch in die Absorptionskolonne 37 geleitet. Dort wird durch Gegenstromabsorption mit dem über Leitung 317 zugeführten Lösungsmittel Acrylsäure aus dem Reaktionsprodukt der Gasphasenoxidation abgetrennt. Das Lösungsmittel kann zum Beispiel aus einem Gemisch aus 75 Gew.-% Diphenylether und 25 Gew.-% Diphenyl bestehen. Es kann darüber hinaus auch bis zu 25 Gew.-% polare Lösungsmittel zur Reduktion des Feststoffanfalls aufweisen, zum Beispiel Dimethylphthalat. Das mit Acrylsäure beladene Lösungsmittel wird in Kühleinheit 36 geleitet und aus dieser über einen Seitenabzug 318 zur weiteren, hier nicht dargestellten Aufbereitung abgezogen. Diese Aufbereitung enthält regelmäßig eine Leichtsiederstrippung und notwendigerweise eine Lösungsmitteldestillation oder ein vergleichbares Verfahren. Die von Acrylsäure weitgehend befreiten Reaktionsprodukte werden aus der Absorptionskolonne 37 über Kopf abgezogen und in einen Quenchapparat 38 geleitet und dort, vorzugsweise auf eine Temperatur von 20°C bis 60°C, abgekühlt. Der nicht-kondensierbare Teil dieser Reaktionsprodukte wird über eine Leitung 39 entnommen und, nach der Abtrennung und Ableitung von Inertgaskomponenten über eine Leitung 311, als Kreisgas über eine Leitung 310 zur Gasphasenoxidation von Propen zurückgeführt. Dieses Kreisgas enthält unter anderem nicht umgesetzte Edukte der Gasphasenoxidation, Stickstoff und Kohlenstoffoxide. Der kondensierbare Teil der von Acrylsäure befreiten Reaktionsprodukte wird über eine Leitung 312 entnommen. Dieses als Sauerwasser bezeichnete Kondensat besteht aus einer wäßrigen Lösung, die neben Acrylsäure noch relevante Mengen an Essigsäure, Maleinsäure und Formaldehyd, sowie weitere Säuren enthält. Das Sauerwasser wird dann über Leitung 312 einer erfindungsgemäßen Mischeinheit 313 zugeführt. Dort wird das Sauerwasser mit einem Teilstrom des ersten Lösungsmittels, der über Leitung 320 herangeführt wird und von der Aufbereitung des mit Acrylsäure beladenen

Lösungsmittelstroms kommt, vermischt. Mit dem erfindungsgemäßen Mischer wird eine sehr homogene Mischung der verschiedenen Phasen und eine einheitliche Tröpfchengröße erzeugt. Danach wird das Gemisch einem Abscheider 314 zugeleitet. Aus dem Abscheider werden dann die getrennten Phasen über Leitungen 315 und 316 entnommen. Mit Hilfe des erfindungsgemäßen Mixers konnte die Rührzeit bei gleichzeitig verbesserter Phasentrennung etwa um den Faktor 10 verringert werden. Dementsprechend kann auch die Baugröße des Mixers reduziert werden.

Die dargestellten Hauptschritte der Acrylsäureherstellung können durch eine Vielzahl weiterer Schritte ergänzt werden, die jedoch die Bedeutung der vorliegenden Erfindung nicht mindern. So kann die Aufbereitung des aus der Absorptionskolonne abgezogenen, mit Acrylsäure beladenen Lösungsmittels in vielfältiger Weise erfolgen, genauso wie das resultierende Sauerwasser vor oder nach der Mittelsiederextraktion einer weiteren Aufbereitung unterzogen werden kann.

#### Patentansprüche

1. Mischvorrichtung zur Vermischung von mindestens zwei flüssigen Phasen, die ein Gehäuse (1) mit einem Innendurchmesser D aufweist, in dem mindestens ein Rührer (2) mit zwei bis fünf kreisabschnittsförmigen Flügeln angebracht ist, die einen Krümmungsradius K aufweisen, wobei die durch den Rührer (2) bei dessen Drehung überstrichene kreisförmige Fläche innerhalb des Gehäuses (1) einen Durchmesser E besitzt, dadurch gekennzeichnet, daß K von  $0,10 \cdot D$  bis  $0,30 \cdot D$ , vorzugsweise von  $0,125 \cdot D$  bis  $0,25 \cdot D$ , und E von  $0,35 \cdot D$  bis  $0,65 \cdot D$ , vorzugsweise von  $0,45 \cdot D$  bis  $0,55 \cdot D$ , beträgt.
2. Mischvorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Rührer 2 drei kreisabschnittsförmige Flügel besitzt.
3. Mischvorrichtung nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß an der Innenseite des Gehäuses (1) mindestens eine Wand (3), vorzugsweise senkrecht zum Gehäuse (1), angebracht ist.
4. Mischvorrichtung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß genau so viele Wände (3) in regelmäßigen Abständen an der Innenseite des Gehäuses angebracht sind, wie der Rührer (2) Flügel aufweist.
5. Mischvorrichtung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß in dem Gehäuse (1) mindestens zwei Rührer (2) auf einer gemeinsamen Rotationsachse R nacheinander in regelmäßigen Abständen angebracht sind, wobei der erste und der letzte Rührer (2) vom Gehäuse (1) entlang R jeweils einen Abstand einhält, der 0,4 bis 0,6mal, vorzugsweise 0,5mal, so groß ist, wie der Abstand entlang R zwischen den einzelnen Rührern (2).
6. Verwendung einer Mischvorrichtung nach einem der vorhergehenden Ansprüche in einem Verfahren zur Abtrennung eines oder mehrerer organischen Lösungsmittel aus einer wäßrigen Lösung.
7. Verwendung einer Mischvorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 5 in einem Verfahren zur Herstellung von Acrylsäure durch katalytische Gasphasenoxidation von Propen, wobei aus dem Reaktionsgemisch der Gasphasenoxidation Acrylsäure in einer Absorptionsstufe mit Hilfe

eines ersten Lösungsmittels absorbiert wird, aus der Absorptionsstufe ein Gasgemisch entnommen wird, das an dem ersten Lösungsmittel und an Acrylsäure arm ist,

in einer Kondensationsstufe das Gasgemisch, vorzugsweise auf eine Temperatur von  $20^\circ\text{C}$  bis  $60^\circ\text{C}$ , abgekühlt wird,

die kondensierte Phase des Gasgemisches aus der Kondensationsstufe als Sauerwasser entnommen wird,

die gasförmige Phase des Gasgemisches aus der Kondensationsstufe entnommen und zumindest teilweise als Kreisgas zur Gasphasenoxidation zurückgeführt wird, und

das Sauerwasser zusammen mit mindestens einem Teilstrom des ersten Lösungsmittels der Mischvorrichtung und anschließend einem Abscheider zugeleitet wird, um Mittelsieder, insbesondere Maleinsäureanhydrid, aus dem ersten Lösungsmittel abzutrennen.

8. Verwendung nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß das erste Lösungsmittel mindestens ein substituiertes oder unsubstituiertes Diphenyl, einen substituierten oder unsubstituierten Diphenylether oder Dimethylphthalat enthält.

Hierzu 2 Seite(n) Zeichnungen

FIG.1

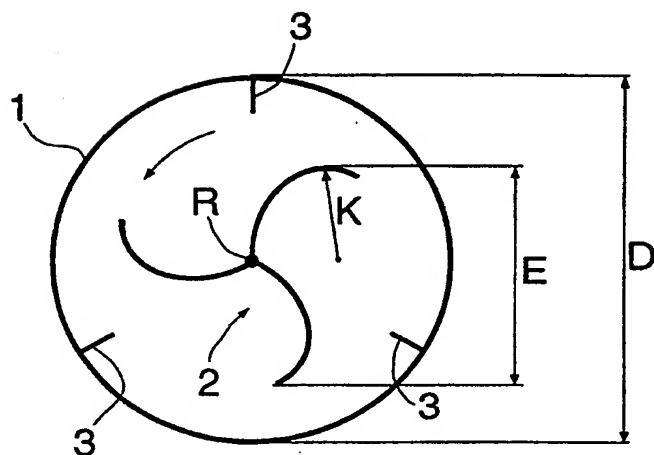


FIG.2

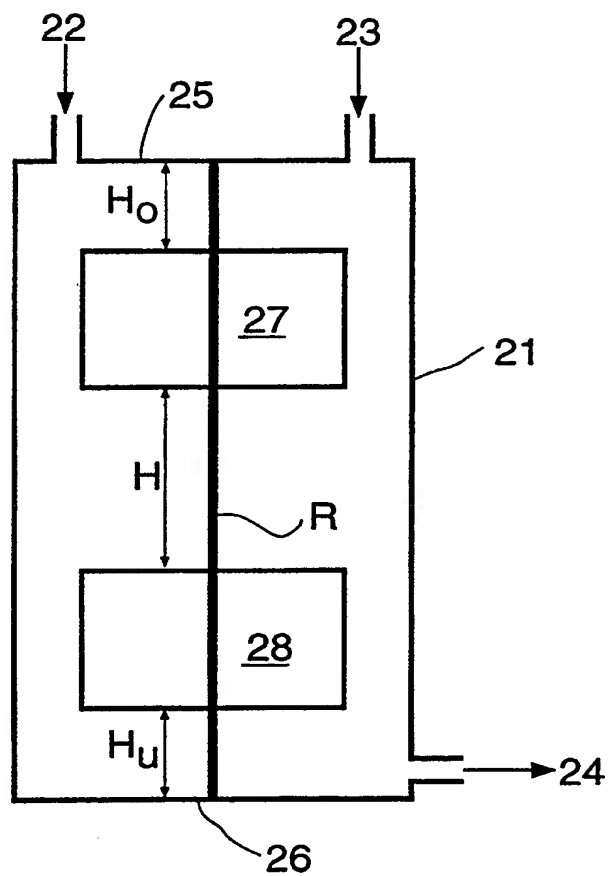
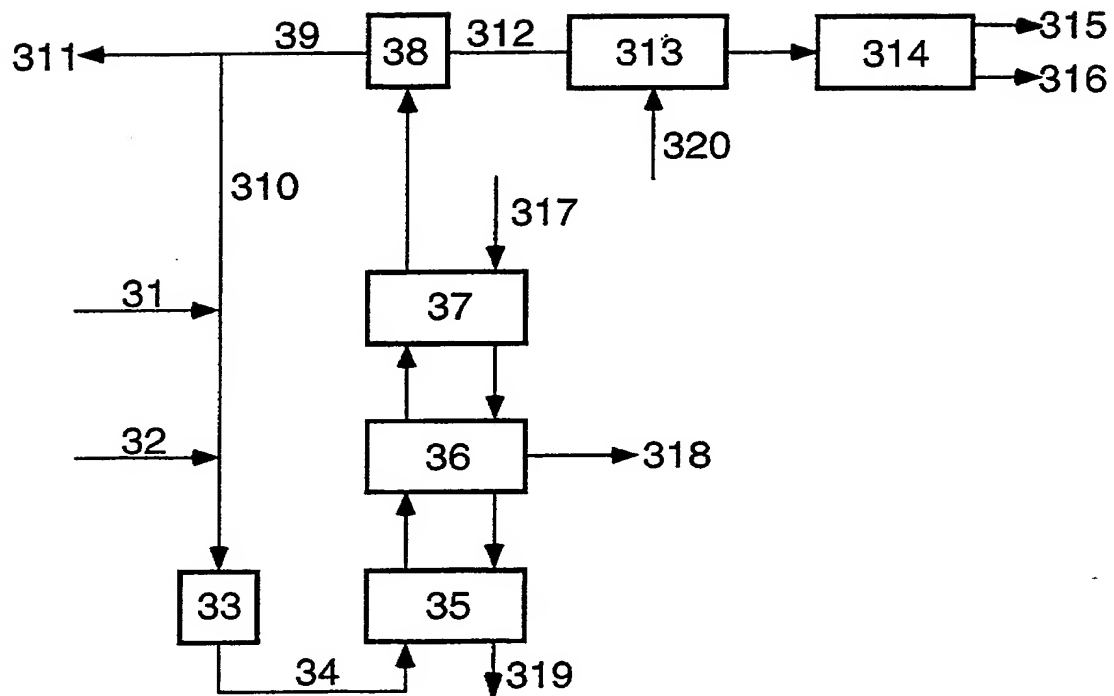


FIG.3



## Description

The present invention relates to a mixing apparatus and an advantageous use of this mixing apparatus in the context of preparing acrylic acid by catalytic gas-phase oxidation of propene.

In a great number of industrial processes, a plurality of liquids must be mixed with one another. In the liquid-liquid extraction of a substance from a solution, for example, an extraction medium must be mixed with the solution very intensively in order to ensure firstly rapid and complete mass transfer and then complete and rapid phase separation. To achieve good phase separation, attempts are made to perform mixing under mild conditions, ie. excessive energy must not be supplied during stirring.

The problem of mixing liquids is also of particular importance, for example, in the preparation of acrylic acid by catalytic gas-phase oxidation of propene. In this process, to prepare acrylic acid, the propene to be oxidized is frequently mixed with a diluent gas or with a recirculated gas containing unreacted starting materials and then fed to the gas-phase oxidation. The gas-phase oxidation reaction mixture is then passed to an absorption column to separate off the acrylic acid. There, the majority of the resulting acrylic acid is separated off from the reaction mixture using a solvent. The unabsorbed components are taken off from the absorption column in the gaseous state and fed to a condensation stage. The condensible and condensed part of this gas mixture is separated off and removed as what is termed acid water. Some of the non-condensable gaseous part is recycled to the gas-phase oxidation and forms which is termed recirculated gas. The acid water is

generally incinerated. After the absorption, undesirably high amounts of medium-boilers, for example maleic anhydride, remain in the solvent. These medium-boilers, in the absence of countermeasures, can accumulate in the solvent. This can be avoided by extracting medium-boilers from the solvent using acid water in an additional extraction stage.

It is an object of the present invention to provide a mixing apparatus for mixtures of liquids of different densities which leads to intensive mixing and easy separability. It is a further object of the present invention to provide an improved process for separating off organic solvents from an aqueous solution. In particular, the process for preparing acrylic acid by catalytic gas-phase oxidation of propene is also to be improved.

We have found that these objects are achieved by the mixing apparatus described in the claims and by the processes and uses described there.

According to the invention, a mixing apparatus is provided for mixing at least two liquid phases, which mixing apparatus has a housing of internal diameter  $D$  in which is mounted at least one agitator having from two to five, preferably three, circular segmental blades which have a radius of curvature  $K$  and the circular area within the housing swept by the agitator during its rotation having a diameter  $E$ . According to the invention the following conditions apply for  $K$  and  $E$ :  $K$  is from  $0.10 \cdot D$  to  $0.30 \cdot D$ , preferably from  $0.125 \cdot D$  to  $0.25 \cdot D$ , and  $E$  from  $0.35 \cdot D$  to  $0.65 \cdot D$ , preferably from  $0.45 \cdot D$  to  $0.55 \cdot D$ . If the agitator, as is preferred, sweeps roughly half of the housing diameter during its rotations, that is  $D = 2 \cdot E$ , this gives a preferred shape for the blades between a quarter circle and a semicircle. When the



mixer according to the invention is used, there is rapid mass transfer and subsequently also rapid separation of the phases in a separator. The explanation is presumably that the mixer according to the invention leads to a  
5 uniform droplet size, typically below 1 mm, in the phases present, which on the one hand leads to more rapid mass transfer and, on the other hand, to more rapid phase separation. This makes considerable savings possible in the mixing time and overall size of the  
10 mixer. The separation time and overall size of the separator can also be correspondingly decreased.

Preferably, at least one wall is mounted on the inside of the housing, which wall in turn is advantageously  
15 arranged perpendicularly to the housing. Baffles of this type are known and promote vortexing of the liquid mixture while the rotor rotates. In particular, when there are just as many walls present as the agitator has blades and these walls are mounted on the inside of the  
20 housing at regular intervals, on each rotation a plurality of chambers are formed in which the mixture is intensively vortexed on account of the motion of the agitator. However, this especially prevents a majority of the liquid from circling together with the rotor  
25 after a period of rotation.

Preference is also given to a mixing apparatus in which at least two agitators are mounted in the housing on a shared axis of rotation sequentially at roughly regular  
30 intervals, the first and the last, in the case of vertical arrangement the top and the bottom, agitators keeping a distance from the housing along the axis of rotation which is from 0.4 to 0.6 times, preferably about 0.5 times the distance along the axis of rotation  
35 between the agitators. The distance between the various agitators should be roughly equal. This gives particularly favourable flow conditions, which lead to

the desired intensive mixing and easy separability.

5 The described mixing apparatus can be used advantageously in a process for separating off one or more organic solvents from an aqueous solution, since not only the mixing and thus the mass transfer, but also the separation, are greatly accelerated by the mixer according to the invention. Liquid-liquid extraction processes can thus be considerably improved using the  
10 present invention.

According to the invention, the novel mixer can also be used in an improved process for preparing acrylic acid by catalytic gas-phase oxidation of propene, acrylic  
15 acid being absorbed from the gas-phase oxidation reaction mixture in an absorption stage using a first solvent, a gas mixture which is low in the first solvent and acrylic acid being taken off from this absorption stage, the gas mixture being cooled, preferably to from  
20 20°C to 60°C, in a condensation stage, the condensed phase of the gas mixture being taken off as acid water from the condensation stage, and the gaseous phase of the gas mixture being taken off from the condensation stage and at least in part recycled as recirculating gas  
25 to the gas-phase oxidation. According to the invention, the acid water, together with at least a part-stream of the first solvent, is passed as described above to a mixing apparatus and then fed to a separator, in order to separate off medium-boilers, in particular maleic  
30 anhydride, from the first solvent. The first solvent preferably comprises at least one substituted or unsubstituted biphenyl, substituted or unsubstituted diphenyl ether or dimethyl phthalate or mixtures thereof.

35

The present invention is described below with reference to Figures 1 to 3. In the drawings:

Figure 1: shows an example of a mixing apparatus according to the invention in plan view;

Figure 2: shows an example of a mixing apparatus according to the invention having two agitators;

Figure 3: shows an example of a process for preparing acrylic acid modified according to the invention.

10 Figure 1 shows a mixer having a housing 1 and an agitator 2 which can rotate about an axis of rotation R. The direction of rotation is given in the diagram by an arrow. The dimensions and the arrangement of the agitator correspond to those conditions established in  
15 the claims and reproduced above for the radius of curvature K and the diameter of the swept surface E. The blades of the agitator shown can be manufactured, for example, simply by dividing, for example quartering, a tube of appropriate diameter. The mixer according to  
20 Figure 1 has a three-blade agitator with which particularly advantageous results can be achieved in practice. As described, bulkhead plates 3 can also be mounted on the inner wall of the housing, to prevent or reduce rotary flow of the liquid together with the  
25 agitator.

These partitions 3 do not need to lie completely against the housing, they can also leave a gap open at the housing wall, which in some circumstances can lead to  
30 additional vortexing of the liquid mixture.

In Figure 2, a particularly advantageous form of the mixer according to the invention is depicted. The housing 21 of this mixer has two inlets 22, 23 for the  
35 liquids to be mixed and an outlet 24 for the mixture. Two agitators 27, 28 are mounted in the housing 21 according to the above conditions for the arrangement

and formation of the agitator, that is their radius of curvature and the diameter of the area swept by them complies with the conditions specified in the claims. The parameters then still open, that is the distance of the agitators 27, 28 from the top 25 and the bottom 26 of the housing 21 along the shared axis of rotation R of the agitators 27, 28 are advantageously specified as follows: the distance  $H_0$  between the agitator 27 and the top 25 is roughly the same as the distance  $H_0$  between the agitator 28 and the bottom 26 of the housing 21, and is roughly half the distance H between the two agitators. This arrangement leads to particularly advantageous flow conditions in the mixer, so that the desired complete mixing with uniform droplet size is very readily achieved. Instead of two agitators, three or more agitators can be arranged in this manner, the distance between each two adjacent agitators always being roughly twice the distance of the first and last or top and bottom agitator from the housing wall.

Figure 3, finally, depicts a block diagram of a process modified according to the invention for preparing acrylic acid by catalytic gas-phase oxidation. In this process propene is fed to a reactor 33 via a line 31, and a diluent gas, for example air or steam, is fed to a reactor 33 via a line 32, in which reactor the catalytic gas-phase oxidation of propene proceeds. The resulting acrolein can be oxidized in a further reactor which is not shown. The gas-phase oxidation reaction mixture passes via a line 34 into a quench apparatus 35. There, the reaction mixture is cooled and part of the absorption medium (solvent) is evaporated, which part is fed via a line 317 to an absorption column 37 and is passed from there via a cooling unit 36 to the quench apparatus 35. High-boiling minor components of the solvent are condensed in the quench apparatus 35 and withdrawn via a takeoff line 319. After distilling off

solvent, if appropriate, they are disposed of, for example by being incinerated. The reaction mixture which is already greatly cooled is passed on from the quench apparatus 35 to the cooling unit 36 which consists, for example, of cooling circuits, where it is cooled to the appropriate absorption temperature. The reaction mixture is then passed to the absorption column 37. There, acrylic acid is separated off from the gas-phase oxidation reaction product by counter-current absorption using the solvent fed via line 317. The solvent can comprise, for example, a mixture of 75% by weight of diphenyl ether and 25% by weight of biphenyl. The solvent, furthermore, can also contain up to 25% by weight of polar solvents to reduce the production of solids, for example dimethyl phthalate. The solvent laden with acrylic acid is passed through the cooling unit 36 and withdrawn from this via a side takeoff 318 for further workup which is not shown here. This workup generally comprises stripping of low-boilers and, if necessary, solvent distillation or a comparable process. The reaction products which are substantially freed from acrylic acid are taken off overhead from the absorption column 37 and passed to a quench apparatus 38 and cooled there, preferably to from 20°C to 60°C. The non-condensable part of these reaction products is withdrawn via a line 39 and, after separating off and discharging inert gas components via a line 311, recycled as recirculated gas to the gas-phase oxidation of propene via a line 310. This recirculated gas comprises, inter alia, unreacted starting materials of the gas-phase oxidation, nitrogen and oxides of carbon. The condensable part of the reaction products freed from acrylic acid is withdrawn via a line 312. This condensate, termed acid water, consists of an aqueous solution which comprises, in addition to acrylic acid, other relevant amounts of acetic acid, maleic acid and formaldehyde, as well as other acids. The acid water is then

fed via line 312 to a mixing unit 313 according to the invention. There, the acid water is mixed with a part-stream of the first solvent which is introduced via line 320 and comes from the workup of the solvent stream laden with acrylic acid. A highly homogeneous mixture of the various phases and a uniform droplet size are produced by the mixer according to the invention. The mixture is then passed to a separator 314. The separate phases are then withdrawn from the separator via lines 315 and 316. Using the mixer according to the invention, the stirring time could be decreased roughly by a factor of 10, with, at the same time, improved phase separation. The overall size of the mixer can also accordingly be reduced.

The main acrylic acid preparation steps shown can be supplemented by a multiplicity of further steps which do not decrease the importance of the present invention, however. Thus, the workup of the solvent which is taken off from the absorption column which is laden with acrylic acid can be performed in many ways, just as the resulting acid water can be subjected to further workup upstream or downstream of the medium-boiler extraction.

Patent claims

1. Mixing apparatus for mixing at least two liquid phases, which has a housing (1) of internal diameter D, in which housing at least one agitator (2) having from two to five circular segmental blades is mounted, which blades have a radius of curvature K, the circular area within the housing (1) swept by the agitator (2) during its rotation having a diameter E, characterized in that K is from  $0.10 \cdot D$  to  $0.30 \cdot D$ , preferably from  $0.125 \cdot D$  to  $0.25 \cdot D$ , and E is from  $0.35 \cdot D$  to  $0.65 \cdot D$ , preferably from  $0.45 \cdot D$  to  $0.55 \cdot D$ .
2. Mixing apparatus according to Claim 1, characterized in that the agitator 2 has three circular segmental blades.
3. Mixing apparatus according to Claim 1 or 2, characterized in that at least one wall (3) is mounted, preferably perpendicularly to the housing (1), on the inside of the housing (1).
4. Mixing apparatus according to Claim 3, characterized in that exactly as many walls (3) as the agitator (2) has blades are mounted at regular intervals on the inside of the housing.
5. Mixing apparatus according to one of the preceding claims, characterized in that at least two agitators (2) are mounted in the housing (1) on a shared axis of rotation R sequentially at regular intervals, the first and the last agitator (2) each keeping a distance from the housing (1) along R which is from 0.4 to 0.6 times, preferably 0.5 times, the distance along R between the individual agitators (2).

6. Use of a mixing apparatus according to one of the preceding claims in a process for separating off one or more organic solvents from an aqueous solution.
7. Use of a mixing apparatus according to one of Claims 1 to 5 in a process for preparing acrylic acid by catalytic gas-phase oxidation of propene, acrylic acid being absorbed from the gas-phase oxidation reaction mixture in an absorption stage using a first solvent, a gas mixture which is low in the first solvent and acrylic acid being taken off from the absorption stage, the gas mixture being cooled, preferably to from 20°C to 60°C, in a condensation stage, the condensed phase of the gas mixture being taken off as acid water from the condensation stage, the gaseous phase of the gas mixture being taken off from the condensation stage and at least in part recycled as recirculated gas to the gas-phase oxidation, and the acid water, together with at least a part-stream of the first solvent, being passed to the mixing apparatus and then to a separator in order to separate off medium-boilers, in particular maleic anhydride, from the first solvent.
8. Use according to Claim 7, characterized in that the first solvent comprises at least one substituted or unsubstituted biphenyl, a substituted or unsubstituted diphenyl ether or dimethyl phthalate.



⑫ Laid-open application  
⑩ DE 196 31 628 A1

⑤④

**Mixing apparatus for liquids**

⑤⑦

Mixing apparatus is described for mixing at least two liquid phases, which has a housing of internal diameter  $D$  in which at least one agitator having from two to five circular segmental blades is mounted, which blades have a radius of curvature  $K$ , the circular area within the housing swept by the agitator during its rotation having a diameter  $E$ , and  $K$  being from  $0.10 \cdot D$  to  $0.30 \cdot D$ , preferably from  $0.125 \cdot D$  to  $0.25 \cdot D$ , and  $E$  being from  $0.35 \cdot D$  to  $0.65 \cdot D$ , preferably from  $0.45 \cdot D$  to  $0.55 \cdot D$ .

FIG.1

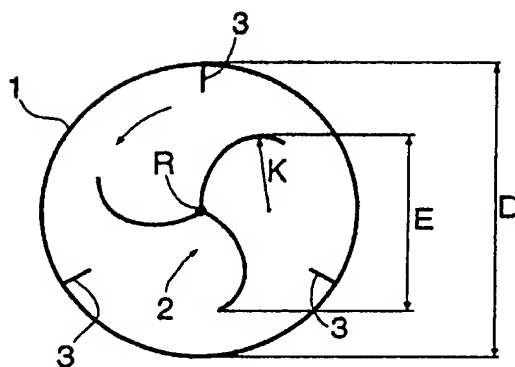


FIG.2

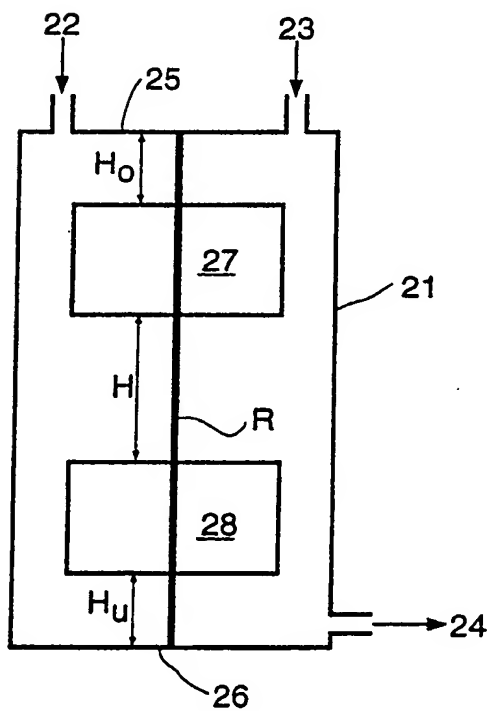


FIG.3

